

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(12)

**EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

(21) Anmeldenummer: 86113390.8

(51) Int. Cl.<sup>4</sup>: **C 08 L 67/02**  
**C 08 K 3/36**

(22) Anmeldetag: 29.09.86

(30) Priorität: 09.10.85 DE 3535985

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
13.05.87 Patentblatt 87/20

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
DE FR GB IT

(71) Anmelder: **BAYER AG**  
Konzernverwaltung RP Patentabteilung  
D-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

(72) Erfinder: **Zabrocki, Karl, Dr.**  
Edelfalter 33  
D-4044 Büttgen(DE)

(72) Erfinder: **Reinking, Klaus, Dr.**  
Robert-Stolz-Strasse 16 b  
D-5632 Wermelskirchen(DE)

(72) Erfinder: **Köhler, Karl-Heinz, Dr.**  
Buschstrasse 165  
D-4150 Krefeld(DE)

(72) Erfinder: **Lange, Ralf, Dr.**  
Bethelstrasse 19  
D-4150 Krefeld 1(DE)

(54) **Mineralgefüllte thermoplastische Polyester, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen.**

(57) Durch Zusatz von gemahlenem Quarz und/oder gemahlenem Cristobalit zur thermoplastischen Polyestern lassen sich Mischungen erhalten, welche die typischen Vorteile mineralgefüllter Polyester besitzen, ohne daß ein Zähigkeitsverlust eintritt.

**EP 0 221 338 A1**

5 BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 5090 Leverkusen, Bayerwerk  
Konzernverwaltung RP  
Patentabteilung Pv/m-c

10

Mineralgefüllte thermoplastische Polyester, Verfahren zu  
ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen

---

15

Die Erfindung betrifft thermoplastisch verarbeitbare Polyester, die gemahlenen Quarz und/oder gemahlenen Crystobalit als Füllstoff enthalten, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen, vornehmlich  
20 für den Spritzguß.

Mit nicht faserförmigen Mineralien gefüllte thermoplastische Polyester sind als Werkstoffe in den Bereichen Elektrotechnik und Elektronik sowie im Fahrzeugbau zur Herstellung verschiedenster Formteile im Einsatz. Hauptvorteil derartiger Werkstoffe sind ihre hohe chemische und thermische Beständigkeit sowie die leichte Verarbeitbarkeit z.B. im Spritzgußverfahren.

30 Gegenüber ungefüllten und mit faserförmigen anorganischen Füllstoffen, z.B. Glasfasern, ausgerüsteten Polyestern zeichnen sich mineralgefüllte Polyester durch hervorragenden Oberflächenglanz, hohe Kriechstrom- und Lichtbogenfestigkeit sowie geringen Verzug beim Erstarren des Formteils aus.  
35

Le A 24 068-EP

5 Als nicht faserförmige mineralische Füllstoffe wurden  
schon die unterschiedlichsten Materialien verwendet, bei-  
spielsweise Talk (DE-OS 20 51 331, 20 51 333), Dolomit  
(EP-A 57 161), Novaculit (US-PS 37 40 341, 37 45 140,  
40 18 738), Kaolin, Glimmer, Aluminiumoxid, Silicagel  
10 (JP-PS 15 191/69).

Den genannten Vorteilen, die mineralgefüllte Polyester mit  
sich bringen, steht der Nachteil des Zähigkeitsverlusts  
gegenüber. Durch Verwendung möglichst feinteiliger Füll-  
15 stoffe kann man zwar versuchen, diesen Effekt möglichst  
gering zu halten; vermeiden ließ er sich bis jetzt jedoch  
noch nicht.

In der US-PS 37 40 371 wird erklärt, weshalb Novaculit-  
20 gefüllte Polyester bessere mechanische Eigenschaften als  
mit anderen Mineralien gefüllte Polyester besitzen:  
Erstens erlaubt die hydrophile Oberfläche einen festeren  
Verbund zwischen Füllstoff und Polyester; zweitens werden  
durch die Abwesenheit scharfer Kanten beim kryptokristal-  
25 linen Novaculit Spannungsspitzen an der Grenzfläche Füll-  
stoff/Polyester vermieden. Dies ist aber bei der spröden  
Natur teilkristalliner Polyester besonders wichtig.

Es wurde nun überraschenderweise gefunden, daß man Poly-  
30 ester erhält, welche die Vorteile mineralgefüllter Poly-  
ester besitzen, ohne daß ein Zähigkeitsverlust eintritt,  
wenn man als Füllstoff gemahlenen Quarz und/oder gemahle-  
nen Cristobalit einsetzt, dessen bzw. deren Teilchendurch-  
messer einen bestimmten Wert nicht überschreitet.  
35

Le A 24 068

- 5 Gegenstand der Erfindung sind also Mischungen aus
- A) 20 bis 80 Gew.-%, vorzugsweise 40 bis 75 Gew.-%, thermoplastischem Polyester,
- 10 B) 5 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 20 bis 50 Gew.-%, mineralischem Füllstoff,
- C) 0 bis 30 Gew.-%, vorzugsweise 0 oder 10 bis 25 Gew.-%, eines Acrylat- oder Butadienkautschuks,
- 15 D) 0 bis 30 Gew.-% Glasfasern und
- E) 0 bis 10 Gew.-% üblicher Hilfsstoffe,
- 20 wobei sich die Prozentangaben auf die Summe der Komponenten A bis E beziehen,
- dadurch gekennzeichnet, daß der Füllstoff B ein gemahlener Quarz und/oder ein gemahlener Cristobalit ist, wovon mindestens 50 Gew.-% einen Teilchendurchmesser von höchstens 2,5 µm besitzen.
- 25
- Thermoplastische Polyester A im Sinne der Erfindung sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder
- 30 ihren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. Dimethylestern oder Anhydriden) und aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Diolen.
- Bevorzugte Polyester A lassen sich aus Terephthalsäure
- 35 (oder ihren reaktionsfähigen Derivaten) und Alkandiolen

mit 2 bis 10 C-Atomen nach bekannten Methoden herstellen  
5 (Kunststoff-Handbuch, Bd. VIII, S. 695 ff, Carl Hanser  
Verlag, München 1973).

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate A enthalten mindestens  
80, vorzugsweise mindestens 90 Mol-%, bezogen auf die Di-  
10 carbonsäurekomponente, Terephthalsäurereste und mindestens  
80, vorzugsweise mindestens 90 Mol-%, bezogen auf die  
Diolkomponente, Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-  
reste.

15 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate A können neben  
Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol-% Reste anderer aro-  
matischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis  
14 C-Atomen und/oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4  
bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure,  
20 Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, Diphenyl-  
4,4'-dicarbonsäure, Bernstein-, Adipin-, Sebacinsäure,  
Cyclohexandiessigsäure.

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate A können neben  
25 Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-resten bis zu 20 Mol-%  
anderer aliphatischer Dirole mit 3 bis 21 C-Atomen oder  
cycloaliphatischer Dirole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten,  
z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3,  
Neopentylglykol, Pentan-diol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclo-  
30 hexan-dimethanol-1,4, 3-Methylpentandiol-2,4, 2-Methyl-  
pentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3 und -1,5,  
2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexan-  
diol-2,5, 1,4-Di-(8-hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-  
hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetra-  
35

Le A 24 068

5 methyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(3- $\beta$ -hydroxyethoxyphenyl)-  
propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-OS  
24 07 674, 24 07 776, 27 15 932).

10 Die Polyalkylenterephthalate A können durch Einbau rela-  
tiv kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3-  
oder 4-basischer Carbonsäuren, wie sie z.B. in der DE-OS  
19 00 270 und der US-PS 36 92 744 beschrieben sind, ver-  
zweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel  
sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethyloläthan und  
15 -propan und Pentaerythrit. Es ist ratsam, nicht mehr als  
1 Mol-% des Verzweigungsmittels, bezogen auf die Säurekom-  
ponente, zu verwenden.

20 Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate A, die  
allein aus Terephthalsäure oder deren reaktionsfähigen  
Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol  
oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind.

25 Die als Komponente A vorzugsweise verwendeten Polyethylen-  
terephthalate besitzen im allgemeinen eine Intrinsic-Vis-  
kosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis  
1,3 dl/g, insbesondere 0,6 bis 1,2 dl/g, und die als Kom-  
ponente A verwendeten Polybutylenterephthalate besitzen  
im allgemeinen eine Intrinsic-Viskosität von 0,7 bis  
30 1,6 dl/g, vorzugsweise 0,8 bis 1,3 dl/g, insbesondere 0,8  
bis 1,05 dl/g, jeweils gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol  
(1:1 Gewichtsteile) bei 25°C.

35 Will man als Polyesterkomponente A Polyethylenterephtha-

le A 24 068



5 lat/Polybutylenterephthalat-Mischungen einsetzen, so wählt  
 man vorzugsweise Polyethylenterephthalate mit einer In-  
 trinsic-Viskosität von 0,65 bis 0,9 dl/g und Polybutylen-  
 terephthalate mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,8 bis  
 1,4 dl/g und Polyethylenterephthalat/Polybutylenterephtha-  
 10 lat-Mischungsverhältnisse von 90:10 bis 10:90, vorzugswei-  
 se von 30:70 bis 90:10 (bezogen auf Gewicht). Anstelle von  
 Polyestertermischungen lassen sich mit dem gleichen Erfolg  
 auch die entsprechenden Copolyester einsetzen.

15 Im Zusammenhang mit dem gemahlten Quarz B bedeutet  
 "Quarz" nicht allgemein Siliciumdioxid; erfindungsgemäß  
 werden mit "Quarz" gemäß der Bedeutung im engeren Sinne  
 die beiden kristallinen Siliciumdioxid-Modifikationen  $\alpha$ -  
 und  $\beta$ -Quarz - nicht aber glasige oder amorphe, also nicht  
 20 kristalline, Materialien - bezeichnet.

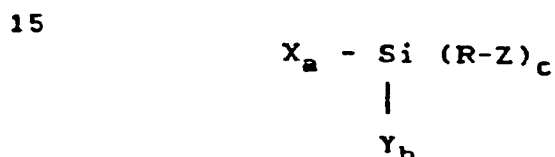
Die hochfeinen Produkte B erhält man durch Mahlen von ge-  
 reinigten, gegebenenfalls thermisch umgewandelten, Quarz-  
 und Cristobalitsanden, z.B. in Rohrmühlen, und anschlie-  
 25 ßende Teilchengrößen-Fraktionierung, z.B. über Windsich-  
 ter. Der gemahlene Quarz bzw. Cristobalit besteht zu min-  
 destens 99 Gew.-%, vorzugsweise zu mindestens 99,5 Gew.-%,  
 aus Siliciumdioxid. Er ist - im Gegensatz zu Novaculit -  
 scharfkantig und splitterförmig. Mineralogisch gesehen,  
 30 gehört er zu den kristallinen Siliciumdioxid-Modifika-  
 tionen, nicht zu den kryptokristallinen, wie z.B. Flint,  
 Novaculit und verschiedene Schmucksteine, vgl. z.B.  
 Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie 21 (4.  
 Aufl.), 440, Verlag Chemie, Weinheim 1982.

35 Ein weiteres Unterscheidungsmerkmal zwischen Quarz und  
 Novaculit ist die bei Quarz etwa doppelt so hohe Pack-

Le A 24 068

5 ungsdichte (siehe hierzu Katz u. Milewski, Handbook of  
Fillers and Reinforcements for Plastics, van Nostrand  
1978, S. 144-154). Der erfindungsgemäß zu verwendende  
Quarz besitzt vorzugsweise eine Packungsdichte von  
mindestens 2,4 kg/dm<sup>3</sup>.

10 Der gemahlene Quarz bzw. Crystobalit B kann geschlichtet  
oder ungeschlichtet eingesetzt werden; Schlichte führt zu  
etwas höheren Zähigkeiten. Bevorzugte Schlichten sind  
Silane der Formel



20 worin

X eine hydrolysierbare Gruppe, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alk-  
oxy oder ein H-Atom,

25 Y ein Wasserstoffatom oder einen einwertigen C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Koh-  
lenwasserstoffrest, vorzugsweise Vinyl oder Phenyl,

R einen zweiwertigen C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffrest, vor-  
zugsweise Propylen,

30 Z eine funktionelle Gruppe, vorzugsweise Amino, Glycid-  
oxy, (Meth-)Acryloyl,

a, c eine ganze Zahl von 1 bis 3,

35 b Null, 1 oder 2,

Le A 24 068

5      $a + b + c = 4$

bedeuten.

Vorzugsweise sind  $a = 3$ ,  $b = 0$  und  $c = 1$ .

10    Als Schlichte bevorzugte Silane sind z.B.

- 15     $\delta$ -Aminopropyltriethoxysilan,  
       $\delta$ -Aminopropylphenyldimethoxysilan,  
       $\delta$ -Aminopropyltrimethoxysilan,  
       $\delta$ -Glycidoxypropyltrimethoxysilan,  
       $\delta$ -Methacryloxypropyltrimethoxysilan,  
       $\delta$ -Vinyltrimethoxysilan.

20    Zwar kann man die Schlichte direkt beim Mischen der Komponenten A bis E zusetzen, jedoch ist es bevorzugt, sie während oder nach dem Mahlen auf die Quarz- bzw. Cristobalitoberfläche aufzubringen.

25    Als Komponente C zu verwendende Acrylat- und Butadienkautschuke werden in der Literatur beschrieben; vgl. z.B. DE-OS 16 94 173, 22 48 242, 23 10 034, 23 57 406, DE-PS 24 44 584 = US-PS 40 22 748, DE-OS 27 26 256 = US-PS 40 96 202, US-PS 38 08 180, EP-A 56 243.

30    Bevorzugte Kautschuke C besitzen eine Glasübergangstemperatur von unter  $-30^{\circ}\text{C}$  und umfassen Copolymerisate - insbesondere Pfcopolymerisate - mit kautschukelastischen Eigenschaften, die im wesentlichen aus mindestens 2 der  
35    folgenden Monomeren erhältlich sind: Butadien-1,3, Styrol, Acrylnitril und (Meth)-Acrylsäureester mit 1 bis 18 C-Atomen in der Alkoholkomponente; also Polymerisate, wie sie z.B. in "Methoden der Organischen Chemie" (Houben-Weyl),  
      Le A 24 068

5 Bd. 14/1, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406  
und in C.B. Bucknall, "Toughened Plastics", Appl. Science  
Publishers, London 1977, beschrieben sind.

Besonders bevorzugte Polymerisate C sind Pfropfpolymeri-  
sate.

10

Bevorzugte Pfropfpolymerisate C besitzen mittlere Teil-  
chendurchmesser  $d_{50}$  von 0,05 bis 1, vorzugsweise von 0,1  
bis 0,8, insbesondere von 0,2 bis 0,6  $\mu\text{m}$ .

15

Der mittlere Teilchendurchmesser  $d_{50}$  ist der Durchmesser,  
oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teil-  
chen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugen-Messungen  
(W. Scholtan, H. Lange, Kolloid. Z. und Z. Polymere 250  
(1972), 782-796) oder mittels Elektronenmikroskopie und

20

anschließende Teilchenausählung (G. Kämpf, H. Schuster,  
Angew. Makromolekulare Chemie 14, (1970), 111-129) be-  
stimmt werden.

25

Die Pfropfpolymerisate C sind vernetzt und haben Gelgehal-  
te von mindestens 50 Gew.-%, vorzugsweise mindestens  
80 Gew.-% und insbesondere von mindestens 90 Gew.-%, be-  
zogen auf Pfropfpolymerisat C.

30

Der Gelgehalt der vernetzten Dienkautschuke wird bei 25°C  
in Toluol, der Gelgehalt der vernetzten Acrylatkautschuke  
bei 25°C in Dimethylformamid bestimmt (M. Hoffmann, H.  
Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme  
Verlag Stuttgart 1977).

35

Bevorzugte Pfropfpolymerisate C sind Pfropfpolymerisate  
von 15 bis 60, vorzugsweise 20 bis 50, insbesondere 25 bis  
40 Gew.-% wenigstens eines Vinyl- oder Vinylidenmonomeren  
Le A 24 068

5 aus der Reihe Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylnitril,  $C_1$ - $C_8$ -  
Alkylacrylat,  $C_1$ - $C_8$ -Alkylmethacrylat, Hydroxy- $C_2$ - $C_8$ -alkyl-  
(meth)acrylat, Epoxy- $C_2$ - $C_8$ -alkyl(meth)acrylat auf 40 bis  
85, vorzugsweise 50 bis 80, insbesondere 60 bis 75 Gew.-%  
teilchenförmigem vernetztem Dien- oder Acrylatkautschuk,  
jeweils bezogen auf Pffropfpolymerisat C.

10

Bevorzugte Pffropfmonomere sind Methylmethacrylat sowie  
Mischungen aus Styrol und Methylmethacrylat und Mischungen  
aus Styrol und Acrylnitril.

15 Bevorzugte Dienkautschuke sind vernetzte Homo- und/oder  
Copolymerisate aus konjugierten  $C_4$ - $C_6$ -Dienen. Bevorzugtes  
Dien ist Butandien-1,3. Die Diencopolymerisate können  
neben den Dienresten bis zu 30 Gew.-%, bezogen auf Dien-  
copolymerisat, Reste anderer ethylenisch ungesättigter

20 Monomere, wie z.B. Styrol, Acrylnitril, Ester der Acryl-  
oder Methacrylsäure mit einwertigen  $C_1$ - $C_4$ -Alkoholen, wie  
z.B. Methylacrylat, Ethylacrylat, Methylmethacrylat,  
Ethylmethacrylat, enthalten.

25 Die Herstellung der Dienkautschuk-Pffropfgrundlage und der  
daraus hergestellten Pffropfpolymerisate wird z.B. in  
"Methoden der Organischen Chemie" (Houben-Weyl), Bd. 14/1,  
Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406, sowie in  
Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie, 4. Auflage  
30 Bd. 19, Verlag Chemie, Weinheim, 1981, S. 279 bis 284, be-  
schrieben.

Bevorzugte Pffropfgrundlagen auf Basis Acrylatkautschuk  
sind Polymerisate, die durch Polymerisation von  $C_1$ - $C_8$ -

35

Le A 24 068

5 Alkylacrylaten erhalten werden. Die Polymerisate können  
auch Copolymerisate der Acrylsäureester mit bis zu  
40 Gew.-%, bezogen auf Copolymerisat, anderer Vinylmono-  
merer, wie Styrol, Acrylnitril, Methylmethacrylat, Vinyl-  
ester, Vinylether, sein.

10 Die Acrylatkautschuke sind vernetzt.

Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere mit mehr als  
einer copolymerisierbaren Doppelbindung sind Ester unge-  
sättigter  $C_3$ - $C_{12}$ -Monocarbonsäuren und ungesättigter ein-  
15 wertiger  $C_2$ - $C_{12}$ -Alkohole oder gesättigter  $C_2$ - $C_{20}$ -Polyole  
mit 2 bis 4 OH-Gruppen, wie z.B. mehrfach ungesättigte  
heterocyclische Verbindungen, wie Trivinyl-, Triallylcyan-  
urat und -isocyanurat; insbesondere Triallylcyanurat;  
polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinyl-  
20 benzole; aber auch Triallylphosphat.

Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat,  
Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und hetero-  
cyclische Verbindungen, die mindestens drei copolymeri-  
25 sierbare ethylenisch ungesättigte Doppelbindungen aufwei-  
sen.

Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cycli-  
schen Monomeren Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat,  
30 Trivinylcyanurat, Tris-acryloylhexahydro-s-triazin, Tri-  
allylbenzole.

35

Le A 24 068

5 Die Menge der vernetzenden Monomeren beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf Kautschuk-Pfropfgrundlage.

10 Bei cyclischen, vernetzenden Monomeren mit mindestens drei ethylenisch ungesättigten Doppelbindungen ist es vorteilhaft, nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf Kautschuk-Pfropfgrundlage, zu verwenden.

15 Die erfindungsgemäßen Mischungen können Glasfasern D enthalten. Dadurch wird die Kerbschlagzähigkeit erhöht; mit zunehmendem Glasfasergehalt können aber die spezifischen Vorteile mineralgefüllter Polyester, wie Oberflächenglanz und Verzugsarmut, etwas in den Hintergrund treten.

20 Beispiele für übliche Hilfsstoffe E sind Nukleier- und Entformungsmittel, Stabilisatoren gegen thermischen und UV-Abbau, Pigmente, Farbstoffe etc.

25 Das Mischen der Komponenten kann auf üblichen Kunststoff verarbeitenden Aggregaten, wie Knetern oder Schneckenextrudern, durchgeführt werden. Die Mischbedingungen wird man so wählen, daß die Viskosität der polymeren Komponenten nicht oder kaum abfällt. Selbstverständlich sind auch Vorgemische der einzelnen Komponenten zu verwenden.

30 Weiterer Gegenstand der Erfindung ist also ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen durch Mischen der Komponenten, vorzugsweise bei Temperaturen von 250 bis 320° C.

35

Le A 24 068

5 Die Herstellung von Formkörpern mittels Spritzguß ist bekannt (z.B. E.J. Rubin, Injection Molding Theory and Practice, Wiley Interscience, 1972); geeignete Massetemperaturen liegen bei 250 bis 270°C, bevorzugte Werkzeugtemperaturen bei 80 bis 130°C.

10 Weiterer Gegenstand ist also die Verwendung der erfindungsgemäßen Mischungen zur Herstellung von Formkörpern, vorzugsweise durch Spritzguß.

15 Aus den erfindungsgemäßen Mischungen lassen sich die verschiedensten Gegenstände herstellen, z.B. Vergaserteile, Zündverteiler, Elektrobaueteile, Gehäuseeteile, Lüftungsgitter, Lampenfassungen.

20

25

30

35

Le A 24 068



Tabelle 1

Le A 24 068

Beisp. Mineralart Menge Schlagzähig- Kerbschlag- Zug-E-Modul Vicat B Biege-E-Modul  
(Gew.-X, bez. keit zähigkeit) (DIN 53453) (DIN 53455) (DIN 53460) (DIN 53452)  
auf Gesamt- (DIN 53453) (DIN 53455) (DIN 53460) (DIN 53452)  
mischung) [kJ/m<sup>2</sup>] [MPa] [°C] [MPa]

1	unbeschlichtetes Quarzmehl, Teilchendurchmesser: >50 X sind <2,5 µm	20	>100	1,6	3810	171	3440
2		40	83	1,6	5650	193	4860
3	mit Epoxisilan beschlichtetes Quarzmehl; Teilchendurchmesser: >70 X sind <2,5 µm	40	>100	1,6	5710	191	4900
4	mit Aminosilan beschlichtetes Quarzmehl; Teilchendurchmesser: >70 X sind <2,5 µm	40	92	1,6	5770	193	5050
5	mit Epoxisilan beschlichtetes Cristobalitmehl; Teilchendurchmesser: <65 X sind <2,5 µm	40	90	1,6	5900	191	5180

5 Beispiele und Vergleichsversuche

Ein Polybutylenterephthalat mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,93 dl/g und ein Polyethylen terephthalat mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,77 dl/g wurden im Gewichtsver-  
10 hältnis 60:40 vermischt und bei der Compoundierung auf einem Doppelwellenextruder mit kleinen Mengen Stabilisator, Trennmittel und Kristallisationsbeschleuniger sowie den in Tabelle 1 und 2 angegebenen Mengen verschiedener  
15 anorganischer Zuschlagsstoffe versetzt. Zusätzlich sind die Prüfdaten aus den Formmassen hergestellter Probekörper angeführt. Hieraus wird die Überlegenheit der Systeme mit gemahlenem Quarz und Cristobalit ersichtlich.

20

25

30

35

le A 24 068

T a b e l l e 2

Le A 24 068

Vergl. Mineralart Versuch	Menge (Gew.-%, bez. auf Gesamt- mischung)	Schlagzähig- keit (DIN 53453) [kJ/m <sup>2</sup> ]	Kerbschlag- zähigkeit (DIN 53453) [kJ/m <sup>2</sup> ]	Zug-E-Modul Vicat B [°C]	Biege-E- Modul (DIN 53452) [MPa]
a Aminosilan-behandeltes calciniertes Kaolin Teilchengröße: 50 % < 2 µm	20	91	1,5	3960	182
b Teilchengröße: 50 % < 2 µm	40	33	1,5	6630	198
c Epoxisilan-behandelter Wollastonit, Teilchen- größe: 63 % < 2,5 µm	40	41	1,6	5870	186
d unbehandeltes Talkum Teilchengröße: 69 % < 2 µm	40	14	1,8	8880	191
e unbehandeltes Novaculit Teilchengröße: 80 % < 5 µm Durchschnittl. TG: 2,7 µm	30	15	6,1	4890	178
f unbehandeltes Novaculit Teilchengröße: 100 % < 5 µm Durchschnittl. TG: 2,7 µm	30	61	2,3	5010	183
					4240

5 Patentansprüche:

1. Mischungen aus

- 10 A) 20 bis 80 Gew.-% thermoplastischem Polyester,  
B) 5 bis 50 Gew.-% mineralischem Füllstoff,  
C) 0 bis 30 Gew.-% eines Acrylat- oder Butadien-  
kautschuks,  
15 D) 0 bis 30 Gew.-% Glasfasern und  
E) 0 bis 10 Gew.-% üblicher Hilfsstoffe,  
20 wobei sich die Prozentangaben auf die Summe der Komponenten A bis E beziehen,  
dadurch gekennzeichnet, daß der Füllstoff B ein gemahlenes Quarz und/oder ein gemahlener Cristobalit  
25 ist, wovon mindestens 50 Gew.-% einen Teilchendurchmesser von höchstens 2,5 µm besitzen.

2. Mischungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,  
daß sie 40 bis 75 Gew.-% Komponente A enthalten.  
30  
3. Mischungen nach Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß sie 20 bis 50 Gew.-% Komponente A enthalten.  
35

- 5      4.      Mischungen nach Ansprüchen 1-3, dadurch gekennzeichnet, daß sie 10 bis 25 Gew.-% Komponente C enthalten.
- 10      5.      Mischungen nach Ansprüchen 1-4, dadurch gekennzeichnet, daß der thermoplastische Polyester aus der Reihe Polyethylenterephthalat, Polybutylenterephthalat, deren Mischungen und Poly(ethylen/butylenterephthalat) ausgewählt ist.
- 15      6.      Verfahren zur Herstellung der Mischungen nach Ansprüchen 1 bis 5 durch Mischen der Komponenten bei Temperaturen von 250 bis 320° C.
- 20      7.      Verwendung der Mischungen nach Ansprüchen 1-5 zur Herstellung von Formkörpern.

25

30

35

Le A 24 068



Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0221338

Nummer der Anmeldung

EP 86 11 3390

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE																	
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)														
D, X	US-A-4 018 738 (H.L.RAWLINGS) * Patentansprüche 1-12; Spalte 3, Zeilen 7-40 *	1-7	C 08 L 67/02 C 08 K 3/36														
---																	
X	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 85, nr. 18, November 1976, Seite 55, Zusammenfassung nr. 125139p, Columbus, Ohio, US; & JP-A-76 81 849 (TEIJIN) 17. Juli 1976 * Insgesamt *	1-7															
---																	
A	PATENTS ABSTRACTS OF JAPAN, Band 7, nr. 108 (C-165)[1253], 11. Mai 1983; & JP-A-58 29 858 (NITTO DENKI) 22-02-1983	1															
---																	
A	GUMMI, ASBEST, KUNSTSTOFFE, Band 36, nr. 12, Dezember 1983, Seiten 658-667, A.W.Guntner Verlag, Stuttgart, DE; D.SKUDELNY et al.: "Mineralische Füllstoffe aus Quarz, Cristobalit und Quarzgut" * Seite 658, Absatz 3.3; Seite 663, Absatz 4 - Seite 664 *	1	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl. 4)  C 08 L C 08 K														
---																	
D, A	EP-A-0 056 243 (BAYER) * Patentansprüche 1-12; Seite 7, Zeilen 1-8 *	1-7															
-----																	
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.																	
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 15-01-1987	Prüfer DECOCKER L.														
<table border="0"><tr><td>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</td><td>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</td></tr><tr><td>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet</td><td>D : in der Anmeldung angeführtes Dokument</td></tr><tr><td>Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie</td><td>L : aus andern Gründen angeführtes Dokument</td></tr><tr><td>A : technologischer Hintergrund</td><td></td></tr><tr><td>O : nichtschriftliche Offenbarung</td><td></td></tr><tr><td>P : Zwischenliteratur</td><td></td></tr><tr><td>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</td><td>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</td></tr></table>				KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE	E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet	D : in der Anmeldung angeführtes Dokument	Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie	L : aus andern Gründen angeführtes Dokument	A : technologischer Hintergrund		O : nichtschriftliche Offenbarung		P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze	& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE	E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist																
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet	D : in der Anmeldung angeführtes Dokument																
Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie	L : aus andern Gründen angeführtes Dokument																
A : technologischer Hintergrund																	
O : nichtschriftliche Offenbarung																	
P : Zwischenliteratur																	
T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze	& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument																